

日 本 国 特 許 庁
JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日 2 0 0 2 年 1 2 月 1 9 日
Date of Application:

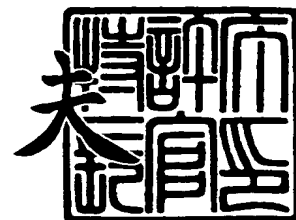
出 願 番 号 特 願 2 0 0 2 - 3 6 8 9 9 0
Application Number:
[ST. 10/C]: [J P 2 0 0 2 - 3 6 8 9 9 0]

出 願 人 株式会社半導体エネルギー研究所
Applicant(s):

2 0 0 3 年 1 0 月 2 8 日

特許庁長官
Commissioner,
Japan Patent Office

今 井 康 夫



出証番号 出証特 2 0 0 3 - 3 0 8 8 9 8 2

【書類名】 特許願

【整理番号】 P006822

【提出日】 平成14年12月19日

【あて先】 特許庁長官 太田 信一郎 殿

【発明者】

 【住所又は居所】 神奈川県厚木市長谷 3 9 8 番地 株式会社半導体エネルギー研究所内

 【氏名】 井上 英子

【発明者】

 【住所又は居所】 神奈川県厚木市長谷 3 9 8 番地 株式会社半導体エネルギー研究所内

 【氏名】 瀬尾 哲史

【発明者】

 【住所又は居所】 神奈川県厚木市長谷 3 9 8 番地 株式会社半導体エネルギー研究所内

 【氏名】 徳田 篤史

【発明者】

 【住所又は居所】 神奈川県厚木市長谷 3 9 8 番地 株式会社半導体エネルギー研究所内

 【氏名】 野村 亮二

【特許出願人】

 【識別番号】 000153878

 【氏名又は名称】 株式会社半導体エネルギー研究所

 【代表者】 山崎 舜平

【手数料の表示】

 【予納台帳番号】 002543

 【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

 【物件名】 明細書 1

【物件名】	図面	1
【物件名】	要約書	1
【プルーフの要否】	要	

【書類名】明細書

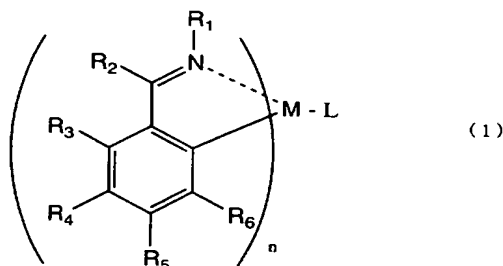
【発明の名称】有機金属錯体および前記有機金属錯体を用いた電界発光素子

【特許請求の範囲】

【請求項 1】

下記一般式（1）で表される有機金属錯体。

【化 1】



（式中、 R_1 はアルキル基、またはアリール基、または置換基を有するアリール基、または複素環残基、または置換基を有する複素環残基を表す。また R_2 は、水素、またはアルキル基、またはアリール基、または置換基を有するアリール基、または複素環残基、または置換基を有する複素環残基を表す。また R_3 、 R_4 、 R_5 、および R_6 は、それぞれ同一でも異なっても良く、水素、またはハロゲン元素、またはアルキル基、またはアルコキシル基、またはアリール基、または置換基を有するアリール基、または複素環残基、または置換基を有する複素環残基を表す。また、 M は第9族元素または第10族元素を表し、前記 M が第9族元素の場合は $n = 2$ 、第10族元素の場合は $n = 1$ となる。また L は、ベータジケトン構造を有するモノアニオン性の配位子、またはカルボキシル基を有するモノアニオン性の二座キレート配位子、またはフェノール性水酸基を有するモノアニオン性の二座キレート配位子を表す。）

【請求項 2】

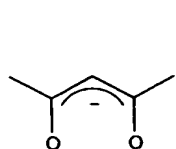
請求項1に記載の有機金属錯体において、前記 M は、イリジウム元素または白金元素であることを特徴とする有機金属錯体。

【請求項 3】

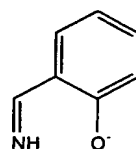
請求項1または請求項2に記載の有機金属錯体において、前記 L は、下記構造式（2）乃至（8）に示すモノアニオン性の配位子のいずれかであることを特徴

とする有機金属錯体。

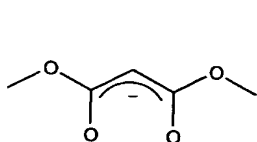
【化 2】



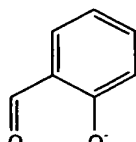
(2)



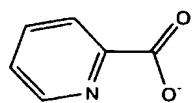
(6)



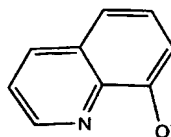
(3)



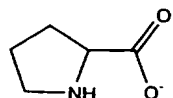
(7)



(4)



(8)



(5)

【請求項 4】

請求項 1 乃至請求項 3 のいずれかに記載の有機金属錯体を用いたことを特徴とする電界発光素子。

【請求項 5】

請求項 1 乃至請求項 3 のいずれかに記載の有機金属錯体を、発光体として用いたことを特徴とする電界発光素子。

【請求項 6】

請求項 4 または請求項 5 に記載の電界発光素子を用いたことを特徴とする発光装置。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、三重項励起状態を発光に変換できる化合物に関する。また本発明は、陽極と、陰極と、電界を加えることで発光が得られる有機化合物を含む層（以下、「電界発光層」と記す）と、を有し、なおかつ前記電界発光層が三重項励起状態を発光に変換できる化合物を含む電界発光素子、および前記電界発光素子を用いた発光装置に関する。

【0002】

【従来の技術】

有機化合物（有機分子）は光を吸収するとエネルギーを持った状態（励起状態）となる。この励起状態を経由することにより、種々の反応（光化学反応）を起こす場合や発光（ルミネッセンス）を生じる場合があり、様々な応用がなされている。特に、発光化合物の応用分野として、電界発光素子（電界を加えることにより発光する素子）が挙げられる。

【0003】

有機化合物を発光体として用いる場合、電界発光素子の発光機構はキャリア注入型である。すなわち、電極間に電界発光層を挟んで電圧を印加することにより、陰極から注入された電子および陰極から注入された正孔が電界発光層中で再結合して、励起状態の分子（以下、「分子励起子」と記す）を形成し、その分子励起子が基底状態に戻る際にエネルギーを放出して発光する。

【0004】

このような電界発光素子において、通常、電界発光層は $1\mu\text{m}$ を下回るほどの薄膜で形成される。また、このような電界発光素子は、発光層そのものが光を放出する自発光型の素子であるため、従来の液晶ディスプレイに用いられているようなバックライトも必要ない。したがって、極めて薄型軽量に作成できることが大きな利点である。

【0005】

また、例えば $100\sim 200\text{nm}$ 程度の電界発光層において、キャリアを注入してから再結合に至るまでの時間は、電界発光層のキャリア移動度を考えると数十ナノ秒程度であり、キャリアの再結合から発光までの過程を含めてもマイクロ秒以内のオーダーで発光に至る。したがって、非常に応答速度が速いことも特長の

一つである。

【0006】

さらに、このような電界発光素子はキャリア注入型の発光素子であるため、直流電圧での駆動が可能であり、ノイズが生じにくい。駆動電圧に関しては、まず電界発光層の厚みを100nm程度の均一な超薄膜とし、また、電界発光層に対するキャリア注入障害を小さくするような電極材料を選択し、さらにはヘテロ構造(二層構造)を導入することによって、5.5Vで100cd/m²の十分な輝度が達成された(例えば、非特許文献1参照)。

【0007】

【非特許文献1】

C.W.Tang and S.A.VanSlyke, "Organic electroluminescent diodes", Applied Physics Letters, vol.51, No.12, 913-915 (1987)

【0008】

こういった薄型軽量・高速応答性・直流低電圧駆動などの特性から、電界発光素子は次世代のフラットパネルディスプレイとして注目されている。また、自発光型であり視野角が広いことから、視認性も比較的良好であり、携帯機器の表示画面に用いる素子として有効と考えられている。

【0009】

ところで、このような電界発光素子において見られる発光は、分子励起子が基底状態に戻る際の発光現象である。この時、有機化合物が形成する分子励起子の種類としては、一重項励起状態(S*)と三重項励起状態(T*)が可能である。また、電界発光素子におけるその統計的な生成比率は、S*:T*=1:3であると考えられている(例えば、非特許文献2)。

【0010】

【非特許文献2】

筒井哲夫、「応用物理学会有機分子・バイオエレクトロニクス分科会・第3回講習会テキスト」、P.31 (1993)

【0011】

しかしながら、一般的な有機化合物は室温において、三重項励起状態からの発

光（燐光）は観測されず、通常は一重項励起状態からの発光（蛍光）のみが観測される。有機化合物の基底状態は通常、一重項状態（ S_0 ）であるため、 T^* （ S_0 遷移（燐光過程）は強度の禁制遷移となり、 S^* （ S_0 遷移（蛍光過程）は許容遷移となるからである。すなわち、一重項励起状態のみが通常は発光に寄与する。

【0012】

したがって、電界発光素子における内部量子効率（注入したキャリアに対して発生するフォトンの割合）の理論的限界は、 $S^*:T^*=1:3$ であることを根拠に25%とされていた。

【0013】

また、発生した光は全て外部に放出されるわけではなく、一部の光は電界発光素子の構成材料（電界発光層材料、電極材料）や基板材料固有の屈折率が原因で取り出すことができない。発生した光のうち外部に取り出される率は光の取り出し効率と呼ばれるが、ガラス基板を有する電界発光素子において、その取り出し効率は約20%程度と言われている。

【0014】

以上の理由から、注入したキャリアが全て分子励起子を形成したとしても、その注入キャリア数に対して最終的に外部に取り出せるフォトンの割合（以下、「外部量子効率」と記す）の理論的限界は、 $25\% \times 20\% = 5\%$ と言われている。すなわち、全てのキャリアが再結合したとしても、そのうちの5%しか光として取り出せない計算になる。

【0015】

ところが近年、三重項励起状態（ T^* ）から基底状態に戻る際に放出されるエネルギー（以下、「三重項励起エネルギー」と記す）を発光に変換できる電界発光素子が相次いで発表され、その発光効率の高さが注目されている（例えば、非特許文献3、非特許文献4参照）。

【0016】

【非特許文献3】

D.F.O'Brien, M.A.Baldo, M.E.Thompson and S.R.Forrest, "Improved energy transfer in electrophosphorescent devices", Applide Physics Letters, vol

.74, No.3, 442-444 (1999)

【 0 0 1 7 】

【非特許文献 4】

Tetsuo TSUTSUI, Moon-Jae YANG, Masayuki YAHIRO, Kenji NAKAMURA, Teruichi WATANABE, Taishi TSUJI, Yoshinori FUKUDA, Takeo WAKIMOTO and Satoshi MIYAGUCHI, "High Quantum Efficiency in Organic Light-Emitting Devices with Iridium-Complex as a Triplet Emissive Center", Japanese Journal of Applied Physics Vol.38, pp.L1502-L1504 (1999)

【 0 0 1 8 】

非特許文献 3 では白金を中心金属とするポルフィリン錯体を、非特許文献 4 ではイリジウムを中心金属とする有機金属錯体を用いており、いずれの錯体も第 3 遷移系列元素を中心金属として導入している燐光発光物質である。その中には、先に述べた外部量子効率の理論的限界値 5 % をゆうに越えるものも存在する。すなわち燐光発光物質を用いた電界発光素子は、従来よりも高い外部量子効率を達成できる。そして、外部量子効率が高くなれば発光輝度も向上する。

【 0 0 1 9 】

したがって、燐光発光物質を用いた電界発光素子は、高輝度発光・高発光効率を達成するための手法として、今後の開発において大きなウェートを占めるものと考えられる。

【 0 0 2 0 】

以上のように、燐光発光物質は電界発光素子への適用が有用であり、期待されているが、その数は少ないのが現状である。非特許文献 4 で用いられているイリジウム錯体は、オルトメタル錯体と呼ばれる有機金属錯体の一種である。この錯体は燐光寿命が数百ナノ秒であり、また、燐光量子収率も高いことから、前記ポルフィリン錯体に比べると輝度の上昇に伴う効率の低下が小さい。その意味で、このような重金属を用いた有機金属錯体は、燐光発光物質を合成するための一つの指針である。

【 0 0 2 1 】

ところで、最近では、電界発光素子のディスプレイ用途としての開発が盛んに

行われている。なかでも、白色発光できる素子の開発は非常に注力されている。これは、モノカラー表示、バックライトなどの照明としての用途の他、カラーフィルターを表示装置に装着すればフルカラー表示が可能なためである。

【0 0 2 2】

フィルターを通す発光装置においては、光の利用効率が低下するため、より低消費電力で高輝度な白色発光を達成できる素子が強く求められている。また、照明のような用途を考慮すると、より高輝度が必要とされることは間違いない。したがって、燐光発光物質を用いた電界発光素子にて白色発光を実現することは、最も有効な手段であるといえる。

【0 0 2 3】

従来の燐光発光物質を用いた白色発光する電界発光素子は、R（レッド）、G（グリーン）、B（ブルー）に発光する材料を混合して薄膜化する方法や、R（レッド）、G（グリーン）、B（ブルー）それぞれに発光する層を積層する方法、あるいは補色の関係（例えば青緑色と橙色）を組み合わせる方法（例えば、非特許文献5参照）などが考えられているが、いずれにしても、白色スペクトルを得るためには複数の異なった発光波長を有する発光材料が必要であるため、駆動電圧が高くなってしまうという問題があった。また、燐光発光物質を用いた電界発光素子で高い発光効率を得るためには、正孔阻止層（ホールブロッキング層）を組み合わせることが必要であるため、非常に複雑な素子構造を要する。

【0 0 2 4】

【非特許文献5】

Brian W. D'Andrade, Jason Brooks, Vadim Adamovich, Mark E. Thompson, and Stephen R. Forrest, "White Light Emission Using Triplet Excimers in Electrophosphorescent Organic Light-Emitting Devices", Advanced Materials, 14, No.15, 1032-1036 (2002)

【0 0 2 5】

このように、白色面発光源が、極めて複雑に組み合わせられた複数種の材料で構成されているため、製造プロセス上の制御が難しい上に、そのプロセスも煩雑なものとなっていた。

【0026】

【発明が解決しようとする課題】

本発明では、三重項励起状態を発光に変換できる有機金属錯体を合成することにより、新たな白色系の材料を提供することを課題とする。

【0027】

また特に、前記有機金属錯体を用いて簡単な素子構造を有する白色系の電界発光素子を作製することにより、発光効率が高く容易に作製できる白色電界発光素子を提供することを課題とする。

【0028】

さらには、前記電界発光素子を用いて発光装置を作成することにより、消費電力の低い発光装置を提供することを課題とする。なお、本明細書中における発光装置とは電界発光素子を用いた発光デバイスや画像表示デバイスを指す。また、電界発光素子にコネクタ、例えば異方伝導性フィルム（EPC：Flexible Printed Circuit）もしくはTAB（Tape Automated Bonding）が取り付けられたモジュール、TABテープもしくはTCP（Tape Carrier Package）が取り付けられたモジュール、TABテープやTCPの先にプリント配線板が設けられたモジュール、または電界発光素子にCOG（Chip On Glass）方式によりIC（集積回路）が直接実装されたモジュールも全て発光装置に含むものとする。

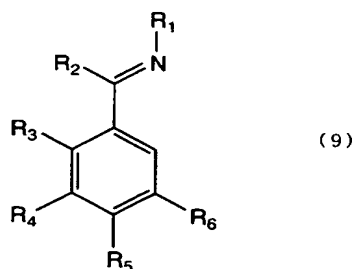
【0029】

【課題を解決するための手段】

本発明者は、下記一般式（9）に示す配位子を用いた場合、第9族元素または第10族元素を中心とする有機金属錯体を形成できることに着目した。

【0030】

【化3】



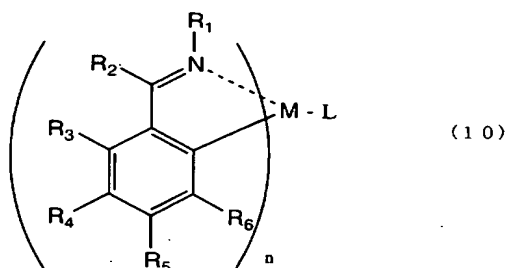
(9)

【0031】

そして本発明者は、一般式（9）の配位子をオルトメタル化して合成した下記一般式（10）で表される錯体が、可視光領域に蛍光・燐光発光の両成分を有することを見出した。この錯体の蛍光・燐光の各発光波長は、短波長側と長波長側にそれぞれ観測されるため、白色系の発光色となることを特長とする。

【0032】

【化4】



【0033】

（式中、 R_1 はアルキル基、またはアリール基、または置換基を有するアリール基、または複素環残基を表す。または置換基を有する複素環残基を表す。また R_2 は、水素、またはアルキル基、またはアリール基、または置換基を有するアリール基、または複素環残基、または置換基を有する複素環残基を表す。また R_3 、および R_4 、および R_5 、および R_6 はそれぞれ同一でも異なっても良く、水素、またはハロゲン元素、またはアルキル基、またはアルコキシ基、またはアリール基、または置換基を有するアリール基、または複素環残基を表す。または置換基を有する複素環残基を表す。また、 M は第9族元素または第10族元素を表し、前記 M が第9族元素の場合は $n = 2$ 、第10族元素の場合は $n = 1$ となる。また L は、ベータジケトン構造を有するモノアニオン性の配位子、またはカルボキシ基を有するモノアニオン性の二座キレート配位子、またはフェノール性水酸基を有するモノアニオン性の二座キレート配位子を表す。）

【0034】

したがって本発明の構成は、上記一般式（10）で表される有機金属錯体を提供するものである。

【0035】

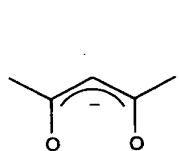
なお、より効率よく燐光発光させるためには、重原子効果の観点から、中心金属としては重い金属の方が好ましい。したがって本発明では、上記一般式において、中心金属Mがイリジウムまたは白金であることを特徴とする。

【0036】

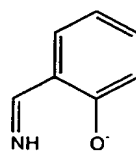
また、上記一般式(10)において、配位子Lは、ベータジケトン構造を有するモノアニオン性の配位子、またはカルボキシル基を有するモノアニオン性の二座キレート配位子、またはフェノール性水酸基を有するモノアニオン性の二座キレート配位子であれば何でも良いが、以下の構造式(11)～(17)に示すモノアニオン性の配位子のいずれかが好ましい。

【0037】

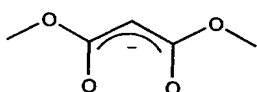
【化5】



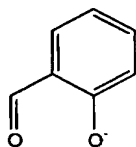
(11)



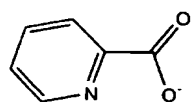
(15)



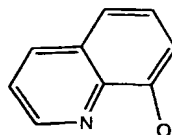
(12)



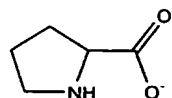
(16)



(13)



(17)



(14)

【0038】

ところで、本発明の有機金属錯体は、三重項励起エネルギーを発光に変換することが可能であるため、電界発光素子に適用することにより素子の高効率化および白色系の発光が可能となり、非常に有効である。したがって本発明では、本発明の有機金属錯体を用いた電界発光素子も含むものとする。

【0039】

なお、このようにして得られた本発明の電界発光素子は高い発光効率を実現できるため、これを発光素子として用いた発光装置（画像表示デバイスや発光デバイス）は、低消費電力を実現できる。したがって本発明では、本発明の有機金属錯体を用いた発光装置も含むものとする。

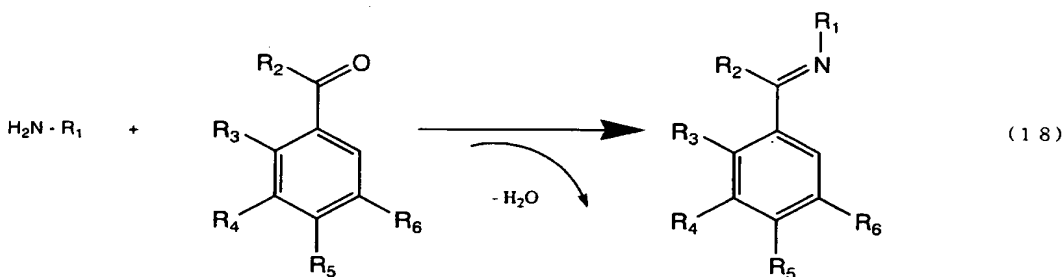
【0040】

【発明の実施の形態】

上記一般式（9）で表される配位子は、下記の合成スキーム（18）にて合成することができる。

【0041】

【化6】



【0042】

このようにして得られた一般式（9）の配位子を用いて、本発明の有機金属錯体（一般式（10））を形成する。この時のオルトメタル化反応としては、公知の合成法を用いればよい。

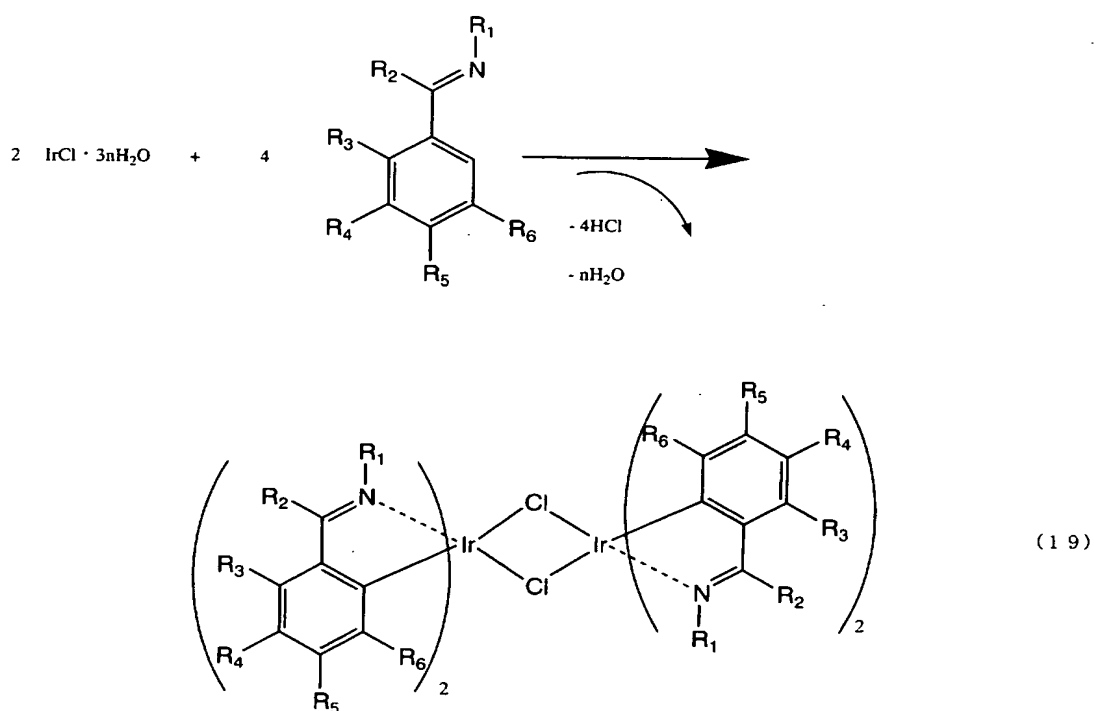
【0043】

例えば、イリジウムを中心金属とする本発明の有機金属錯体を合成する際は、原料として塩化イリジウムの水和物を用い、一般式（9）の配位子と混合して窒素雰囲気下にて還流することにより、まず塩素架橋の複核錯体を合成する（下記

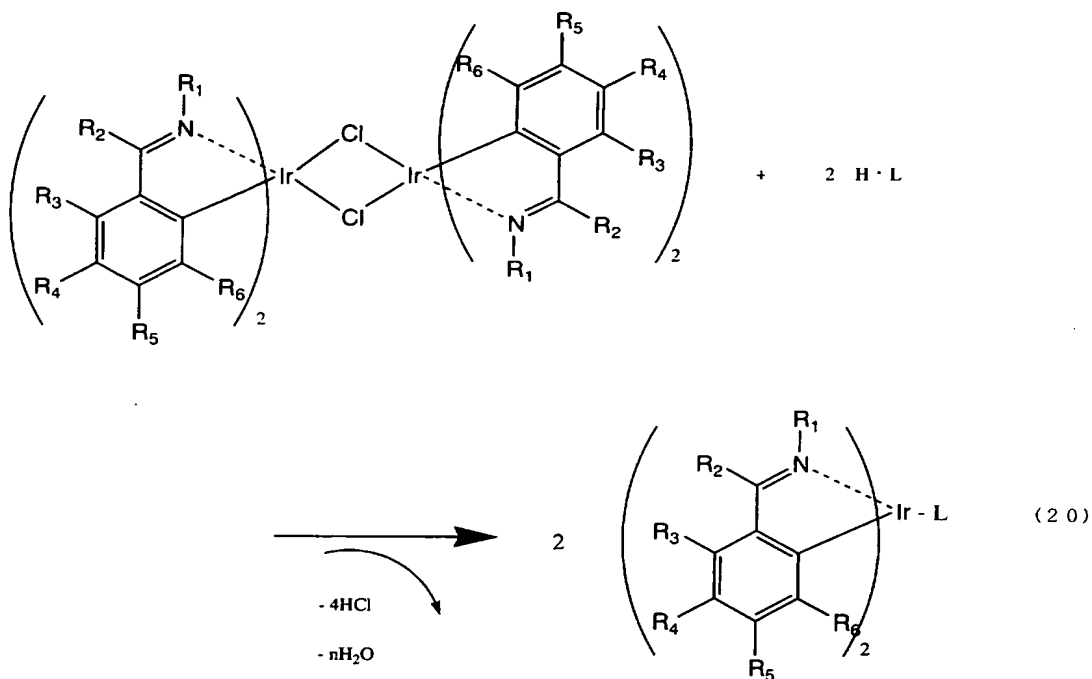
合成スキーム (19))。次に得られた前記複核錯体と配位子Lの原料とを混合して窒素雰囲気下にて還流することにより、塩素架橋を配位子Lで切断し、本発明の有機金属錯体を得る (下記合成スキーム (20))。

【0044】

【化7】



【化 8】



【0045】

なお、本発明で用いる有機金属錯体の合成方法は、上記に示す合成法に限定されるものではない。

【0046】

また、本発明の有機金属錯体は蛍光・燐光発光物質として用いることができるが、蛍光と燐光の両成分を効率よく実現するためには、上記一般式(10)における置換基R2が、水素ではなく、アルキル基等の電子供与性置換基である方が好ましいと考えられる。

【0047】

次に、以下では、本発明の蛍光・燐光発光物質を電界発光素子に適用する形態について述べる。

【0048】

〔実施の形態1〕

本実施の形態1では、本発明の有機金属錯体を含む発光層と、低分子系材料からなる正孔注入層、正孔輸送層、正孔防止層（ホールブロッキング層）および電子輸送層を有する電界発光素子の素子構成について図1を用いて説明する。

【0049】

図1では、基板100上に第1の電極101が形成され、第1の電極101上に電界発光層102が形成され、その上に第2の電極103が形成された構造を有する。

【0050】

なお、ここで基板100に用いる材料としては、従来の電界発光素子に用いられているものであれば良く、例えば、ガラス、石英、透明プラスチックなどからなるものを用いることができる。

【0051】

また、本実施の形態1における第1の電極101は陽極として機能し、第2の電極103は陰極として機能する。

【0052】

すなわち第1の電極101は陽極材料で形成され、ここで用いることのできる陽極材料としては仕事関数の大きい（仕事関数4.0 eV以上）金属、合金、電気伝導性化合物、およびこれらの混合物などを用いることが好ましい。なお、陽極材料の具体例としては、ITO(indium tin oxide)、酸化インジウムに2～20 [%]の酸化亜鉛(ZnO)を混合したIZO(indium zinc oxide)の他、金(Au)、白金(Pt)、ニッケル(Ni)、タングステン(W)、クロム(Cr)、モリブデン(Mo)、鉄(Fe)、コバルト(Co)、銅(Cu)、パラジウム(Pt)、または金属材料の窒化物(TiN)等を用いることができる。

【0053】

一方、第2種の電極103の形成に用いられる陰極材料としては、仕事関数の小さい（仕事関数3.8 eV以上）金属、合金、電気伝導性化合物、およびこれらの混合物などを用いることが好ましい。なお、陰極材料の具体例としては、元素周期律の1族または2族に属する元素、すなわちLiやCs等のアルカリ金属、およびMg、Ca、Sr等のアルカリ土類金属、およびこれらを含む合金(Mg:Ag、Al:Li)や化合物(LiF、CsF、CaF₂)の他、希土類金属を用いて形成することができるが、Al、Ag、ITO等の金属（合金も含む）との積層により形成することもできる。

【0054】

なお、上述した陽極材料および陰極材料は、蒸着法、スパッタリング法、等により薄膜を形成することにより、それぞれ第1の電極101および第2の電極103を形成する。膜厚は、10～500nmとするのが好ましい。

【0055】

また、本発明の電界発光素子において、電界発光層におけるキャリアの再結合により生じる光は、第1の電極101または第2の電極103の一方、又は両方から外部に出射される構成となる。すなわち、第1の電極101側から光を出射させる場合には、第1の電極101を透光性の材料で形成することとし、第2の電極103側から光を出射させる場合には、第2の電極103を透光性の材料で形成することとする。

【0056】

また、電界発光層102は単一の層を用いるか、または複数の層を積層することにより形成されるが、本実施例の形態1では、正孔注入層111、正孔輸送層112、発光層113、ホールブロッキング層114、および電子輸送層115を積層させることにより形成される。

【0057】

正孔注入層111を形成する正孔注入材料としては、フタロシアニン系の化合物が有効である。例えば、フタロシアニン（略称：H₂-Pcと示す）、銅フタロシアニン（略称：Cu-Pcと示す）等を用いることができる。

【0058】

正孔輸送層112を形成する正孔輸送材料としては、芳香族アミン系（すなわち、ベンゼン環-窒素の結合を有するもの）の化合物が好適である。広く用いられている材料として、例えば、4, 4'-ビス [N- (3-メチルフェニル) -N-フェニル-アミノ] -ビフェニル（略称：TPD）の他、その誘導体である4, 4'-ビス [N- (1-ナフチル) -N-フェニル-アミノ] -ビフェニル（略称：α-NPD）、あるいは4, 4', 4"-トリス (N, N-ジフェニル-アミノ) -トリフェニルアミン（略称：TDATA）、4, 4', 4"-トリス [N- (3-メチルフェニル) -N-フェニル-アミノ] -トリフェニルアミン（略称：MTDATA）な

どのスターバスト型芳香族アミン化合物が挙げられる。

【0059】

発光層 113 は、先に一般式 (10) で示した有機金属錯体を含み、この有機金属錯体とホスト材料を共蒸着することにより形成される。ホスト材料としては公知の材料を用いることができ、4, 4'-ビス (N-カルbazolil) -ビフェニル (略称: CBP) や、2, 2', 2''- (1, 3, 5-ベンズトリール) -トリス [1-フェニル-1Hベンズイミダゾール] (略称: TPBI) などが挙げられる。

【0060】

ホールブロッキング層 114 を形成するホールブロッキング性の材料としては、ビス (2-メチル-8-キノリノラト) -4-フェニルフェノラト-アルミニウム (略称: BAlq)、1, 3-ビス [5- (p-tert-ブチルフェニル) -1, 3, 4-オキサジアゾール-2-イル] ベンゼン (略称: OXD-7)、3- (4-tert-ブチルフェニル) -4-フェニル-5- (4-ビフェニリル) -1, 2, 4-トリアゾール (略称: TAZ)、3- (4-tert-ブチルフェニル) -4- (4-エチルフェニル) -5- (4-ビフェニリル) -1, 2, 4-トリアゾール (略称: p-EtTAZ)、バソフェナントロリン (略称: BPhen)、バソキュプロイン (略称: BCP) などを用いることができる。

【0061】

電子輸送層 115 を形成する場合の電子輸送性材料としては、トリス (8-キノリノラト) アルミニウム (略称: Alq₃)、トリス (5-メチル-8-キノリノラト) アルミニウム (略称: Almq₃)、ビス (10-ヒドロキシベンゾ [h] -キノリナト) ベリリウム (略称: BeBq₂) などのキノリン骨格またはベンゾキノリン骨格を有する金属錯体や、先に述べた BAlq などが好適である。また、ビス [2- (2-ヒドロキシフェニル) -ベンゾチアゾラト] 亜鉛 (略称: Zn (BTZ)₂) などのオキサゾール系、チアゾール系配位子を有する金属錯体もある。さらに、金属錯体以外にも、2- (4-ビフェニリル) -5- (4-tert-ブチルフェニル) -1, 3, 4-オキサジアゾール (略称: PBD) や先に述べた OXD-7、TAZ、p-EtTAZ、BPhen、BCP なども電子輸送性材料として用いることができる。

【0062】

以上により、本発明の有機金属錯体を含む発光層 113 と、低分子系材料からなる正孔注入層 111、正孔輸送層 112、ホールブロッキング層（正孔防止層） 114 および電子輸送層 115 を有する電界発光素子を形成することができる。

【0063】

なお、本実施の形態 1 においては、発光層 113 において、本発明の有機金属錯体をゲスト材料として用いており、本発明の有機金属錯体から得られる発光を発光色とする発光素子である。

【0064】**[実施の形態 2]**

本実施の形態 2 では、本発明の有機金属錯体を含む発光層と、高分子系材料からなる正孔注入層を有し、これらを湿式プロセスにて形成する電界発光素子の素子構造について図 2 を用いて説明する。

【0065】

なお、基板 200、第 1 の電極 201、第 2 の電極 203 については、実施の形態 1 と同様の材料を用いて、同様にして形成することができるため説明を省略する。

【0066】

また、電界発光層 202 は複数の層を積層することにより形成されるが、本実施の形態 2 では、正孔注入層 211、発光層 212 を積層することにより形成される。

【0067】

正孔注入層 211 を形成する正孔注入性の材料としては、ポリスチレンスルホン酸（略称：PSS）をドーピングしたポリチオフェンジオキシチオフェン（略称：PEDOT）やポリアニリン、ポリビニルカルバゾール（略称：PVK）などを用いることができる。

【0068】

発光層 212 は、先に一般式（10）で示した本発明の有機金属錯体をゲスト

化合物として含む。ホスト材料はバイポーラ性の材料であれば良いが、ホール輸送材料と電子輸送材料とを混合してバイポーラ性としても良い。ここでは、まず、ホール輸送性の高分子化合物（例えばPVK）と上述した電子輸送材料（例えばPBD）とを7：3（モル比）で同一溶媒にとかし、さらには本発明の有機金属錯体を適量（5w%程度）添加した溶液を調製する。この溶液を湿式塗布することによって、発光層212を得ることができる。

【0069】

以上により、本発明の有機金属化合物を含む発光層212と、高分子材料からなる正孔注入層211を有し、これらを湿式プロセスにて形成する電界発光素子を得ることができる。

【0070】

なお、本実施の形態2においては、発光層212において、本発明の有機金属錯体をゲスト材料として用いており、本発明の有機金属錯体から得られる発光を発光色とする発光素子である。

【0071】

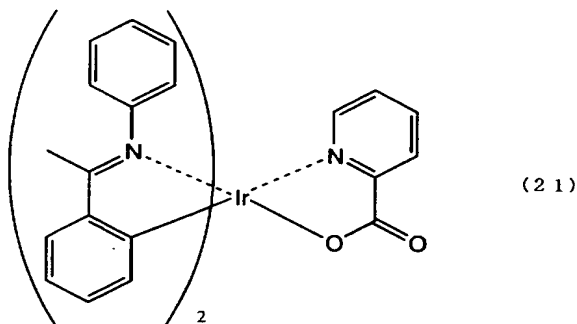
【実施例】

〔合成例〕

本合成例では、下記構造式（21）で表される本発明の有機金属錯体の合成法を例示する。

【0072】

【化9】



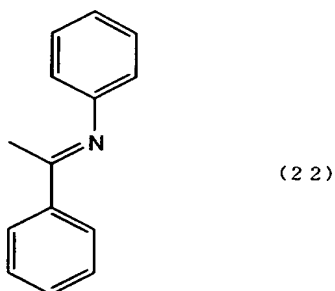
【0073】

まず、アセトフェノンとアニリンを等モル量、エタノール中にて48時間還流後

、溶媒を留去することによって下記構造式（22）で表される配位子を得た（赤褐色油状）。

【 0 0 7 4 】

【化 1 0】

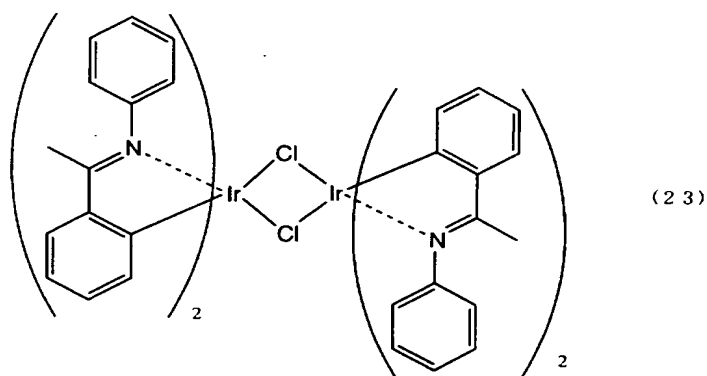


【 0 0 7 5 】

次に、塩化イリジウム ($\text{IrCl}_3 \cdot \text{HCl} \cdot \text{H}_2\text{O}$) と 2.5 当量の構造式 (22) とを、2-エトキシエタノールと水の 3:1 混合溶媒中で窒素雰囲気下にて 16 時間還流し、下記構造式 (23) の複核錯体を得た。得られた粉末を濾取し、エタノールおよびアセトンにて洗浄した後、風乾した。

【 0 0 7 6 】

【化 1 1】



【 0 0 7 7 】

さらに、構造式(23)と3当量のピコリン酸、および10当量の炭酸ナトリウムを、2-エトキシエタノール中で窒素雰囲気下にて16時間還流した。溶媒を留去後、ジクロロメタンによるオープンカラムにて精製し、クロロホルム/メタノールにて再結晶を行い、目的物である上記構造式(21)の化合物を得た。

【0078】

得られた本発明の有機金属錯体（構造式（21））の吸収スペクトル、励起スペクトル、および発光スペクトル（PL）を図3に示す。図3では、配位子（構造式（22））の吸収スペクトルも合わせて記載した。

【0079】

図3に示すとおり、吸収スペクトル②は配位子のスペクトル①と比較して、長波長側（420nm付近および500～600nm）に吸収を有しており、特に500～600nmのブロードな吸収は、三重項MLCT遷移を示唆している。また、励起スペクトル③は二つ観測され、発光スペクトル④は、402nm程度と585nm程度にピークを有する青白い発光であった。短波長側は蛍光過程による発光、長波長側は燐光過程による発光であると考えられる。

【0080】**[実施例1]**

本実施例では、画素部に本発明の電界発光素子を有する発光装置について図4を用いて説明する。なお、図4（A）は、発光装置を示す上面図、図4（B）は図4（A）をA-A'で切断した断面図である。点線で示された401は駆動回路部（ソース側駆動回路）、402は画素部、403は駆動回路部（ゲート側駆動回路）である。また、404は封止基板、405はシール剤であり、シール剤405で囲まれた内側407は、空間になっている。

【0081】

なお、408はソース側駆動回路401及びゲート側駆動回路403に入力される信号を伝送するための配線であり、外部入力端子となるFPC（フレキシブルプリントサーキット）409からビデオ信号、クロック信号、スタート信号、リセット信号等を受け取る。なお、ここではFPCしか図示されていないが、このFPCにはプリント配線基盤（PWB）が取り付けられていても良い。本明細書における発光装置には、発光装置本体だけでなく、それにFPCもしくはPWBが取り付けられた状態をも含むものとする。

【0082】

次に、断面構造について図4（B）を用いて説明する。基板410上には駆動

回路部及び画素部が形成されているが、ここでは、駆動回路部であるソース側駆動回路 401 と、画素部 402 が示されている。

【0083】

なお、ソース側駆動回路 401 は n チャネル型 TFT 423 と p チャネル型 TFT 424 とを組み合わせた CMOS 回路が形成される。また、駆動回路を形成する TFT は、公知の CMOS 回路、PMOS 回路もしくは NMOS 回路で形成しても良い。また、本実施の形態では、基板上に駆動回路を形成したドライバー一体型を示すが、必ずしもその必要はなく、基板上ではなく外部に形成することもできる。

【0084】

また、画素部 402 はスイッチング用 TFT 411 と、電流制御用 TFT 412 とそのドレインに電氣的に接続された第 1 の電極 413 とを含む複数の画素により形成される。なお、第 1 の電極 413 の端部を覆って絶縁物 414 が形成されている。ここでは、ポジ型の感光性アクリル樹脂膜を用いることにより形成する。

【0085】

また、カバレッジを良好なものとするため、絶縁物 414 の上端部または下端部に曲率を有する曲面が形成されるようにする。例えば、絶縁物 414 の材料としてポジ型の感光性アクリルを用いた場合、絶縁物 414 の上端部のみに曲率半径 ($0.2\ \mu\text{m} \sim 3\ \mu\text{m}$) を有する曲面を持たせることが好ましい。また、絶縁物 414 として、感光性の光によってエッチャントに不溶解性となるネガ型、或いは光によってエッチャントに溶解性となるポジ型のいずれも使用することができる。

【0086】

第 1 の電極 413 上には、電界発光層 416、および第 2 の電極 417 がそれぞれ形成されている。ここで、陽極として機能する第 1 の電極 413 に用いる材料としては、仕事関数の大きい材料を用いることが望ましい。例えば、ITO (インジウムスズ酸化物) 膜、インジウム亜鉛酸化物 (IZO) 膜、窒化チタン膜、クロム膜、タングステン膜、Zn 膜、Pt 膜などの単層膜の他、窒化チタンと

アルミニウムを主成分とする膜との積層、窒化チタン膜とアルミニウムを主成分とする膜と窒化チタン膜との3層構造等を用いることができる。なお、積層構造とすると、配線としての抵抗も低く、良好なオーミックコンタクトがとれ、さらに陽極として機能させることができる。

【0087】

また、電界発光層416は、蒸着マスクを用いた蒸着法、またはインクジェット法によって形成される。電界発光層416には、本発明の有機金属錯体（上記一般式(10)）をその一部に用いることとし、その他、組み合わせて用いることのできる材料としては、低分子系材料であっても高分子系材料であっても良い。また、電界発光層に用いる材料としては、通常、有機化合物を単層もしくは積層で用いる場合が多いが、本発明においては、有機化合物からなる膜の一部に無機化合物を用いる構成も含めることとする。

【0088】

さらに、電界発光層416上に形成される第2の電極（陰極）417に用いる材料としては、仕事関数の小さい材料（Al、Ag、Li、Ca、またはこれらの合金MgAg、MgIn、AlLi、CaF₂、またはCaN）を用いればよい。なお、電界発光層416で生じた光が第2の電極417を透過させる場合には、第2の電極（陰極）417として、膜厚を薄くした金属薄膜と、透明導電膜（ITO（酸化インジウム酸化スズ合金）、酸化インジウム酸化亜鉛合金（In₂O₃—ZnO）、酸化亜鉛（ZnO）等）との積層を用いるのが良い。

【0089】

さらにシール剤405で封止基板404を素子基板410と貼り合わせることで、素子基板401、封止基板404、およびシール剤405で囲まれた空間407に電界発光素子418が備えられた構造になっている。なお、空間407には、不活性気体（窒素やアルゴン等）が充填される場合の他、シール剤405で充填される構成も含むものとする。

【0090】

なお、シール剤405にはエポキシ系樹脂を用いるのが好ましい。また、これらの材料はできるだけ水分や酸素を透過しない材料であることが望ましい。また

、封止基板 404 に用いる材料としてガラス基板や石英基板の他、FRP (Fiberglass-Reinforced Plastics)、PVF (ポリビニルフロライド)、マイラー、ポリエステルまたはアクリル等からなるプラスチック基板を用いることができる。

【0091】

以上のようにして、本発明の電界発光素子を有する発光装置を得ることができる。

【0092】

[実施例 2]

本実施例では、本発明の電界発光素子を有する発光装置を用いて完成させた様々な電気器具について説明する。

【0093】

本発明の電界発光素子を有する発光装置を用いて作製された電気器具として、ビデオカメラ、デジタルカメラ、ゴーグル型ディスプレイ (ヘッドマウントディスプレイ)、ナビゲーションシステム、音響再生装置 (カーオーディオ、オーディオコンポ等)、ノート型パーソナルコンピュータ、ゲーム機器、携帯情報端末 (モバイルコンピュータ、携帯電話、携帯型ゲーム機または電子書籍等)、記録媒体を備えた画像再生装置 (具体的にはデジタルビデオディスク (DVD) 等の記録媒体を再生し、その画像を表示しうる表示装置を備えた装置) などが挙げられる。これらの電気器具の具体例を図 5 に示す。

【0094】

図 5 (A) は表示装置であり、筐体 5101、支持台 5102、表示部 5103、スピーカー部 5104、ビデオ入力端子 5105 等を含む。本発明の電界発光素子を有する発光装置をその表示部 2003 に用いることにより作製される。なお、表示装置は、パソコン用、TV 放送受信用、広告表示用などの全ての情報表示用装置が含まれる。

【0095】

図 5 (B) はノート型パーソナルコンピュータであり、本体 5201、筐体 5202、表示部 5203、キーボード 5204、外部接続ポート 5205、ポイ

ンティングマウス 5206 等を含む。本発明の電界発光素子を有する発光装置をその表示部 5203 に用いることにより作製される。

【0096】

図 5 (C) はモバイルコンピュータであり、本体 5301、表示部 5302、スイッチ 5303、操作キー 5304、赤外線ポート 5305 等を含む。本発明の電界発光素子を有する発光装置をその表示部 5302 に用いることにより作製される。

【0097】

図 5 (D) は記録媒体を備えた携帯型の画像再生装置（具体的には DVD 再生装置）であり、本体 5401、筐体 5402、表示部 A 5403、表示部 B 5404、記録媒体（DVD 等）読み込み部 5405、操作キー 5406、スピーカ一部 5407 等を含む。表示部 A 5403 は主として画像情報を表示し、表示部 B 5404 は主として文字情報を表示するが、本発明の電界発光素子を有する発光装置をこれら表示部 A、B 5403、5404 に用いることにより作製される。なお、記録媒体を備えた画像再生装置には家庭用ゲーム機器なども含まれる。

【0098】

図 5 (E) はゴーグル型ディスプレイ（ヘッドマウントディスプレイ）であり、本体 5501、表示部 5502、アーム部 5503 を含む。本発明の電界発光素子を有する発光装置をその表示部 5502 に用いることにより作製される。

【0099】

図 5 (F) はビデオカメラであり、本体 5601、表示部 5602、筐体 5603、外部接続ポート 5604、リモコン受信部 5605、受像部 5606、バッテリー 5607、音声入力部 5608、操作キー 5609、接眼部 5610 等を含む。本発明の電界発光素子を有する発光装置をその表示部 5602 に用いることにより作製される。

【0100】

ここで、図 5 (G) は携帯電話であり、本体 5701、筐体 5702、表示部 5703、音声入力部 5704、音声出力部 5705、操作キー 5706、外部接続ポート 5707、アンテナ 5708 等を含む。本発明の電界発光素子を有す

る発光装置をその表示部 5703 に用いることにより作製される。なお、表示部 5703 は黒色の背景に白色の文字を表示することで携帯電話の消費電力を抑えることができる。

【0101】

以上の様に、本発明の電界発光素子を有する発光装置の適用範囲は極めて広く、この発光装置をあらゆる分野の電気器具に適用することが可能である。

【0102】

【発明の効果】

本発明を実施することで、新たな有機金属化合物を提供することができる。また、前記有機金属化合物を用いて電界発光素子を作製することにより、発光効率の高い電界発光素子を提供することができる。さらには前記有機金属錯体を用いて発光装置や電気器具を作製することにより、消費電力の低い発光装置や電気器具を提供することができる。

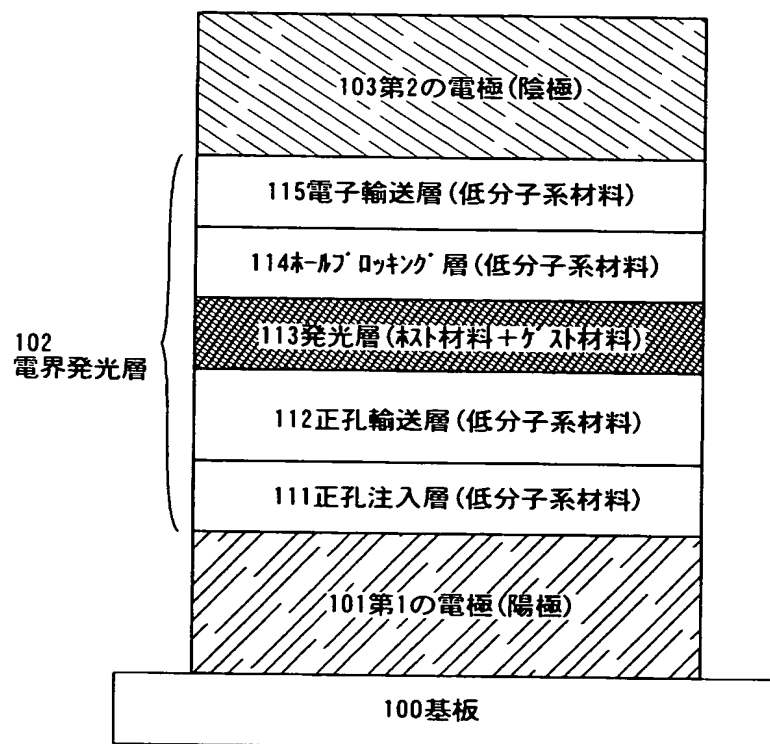
【図面の簡単な説明】

- 【図1】 実施の形態1における電界発光素子の素子構造を説明する図。
- 【図2】 実施の形態2における電界発光素子の素子構造を説明する図。
- 【図3】 本発明の有機金属錯体の吸収・励起・発光スペクトルを示すグラフ。
- 【図4】 本発明の発光装置について説明する図。
- 【図5】 本発明の発光装置を用いた電気器具について説明する図。

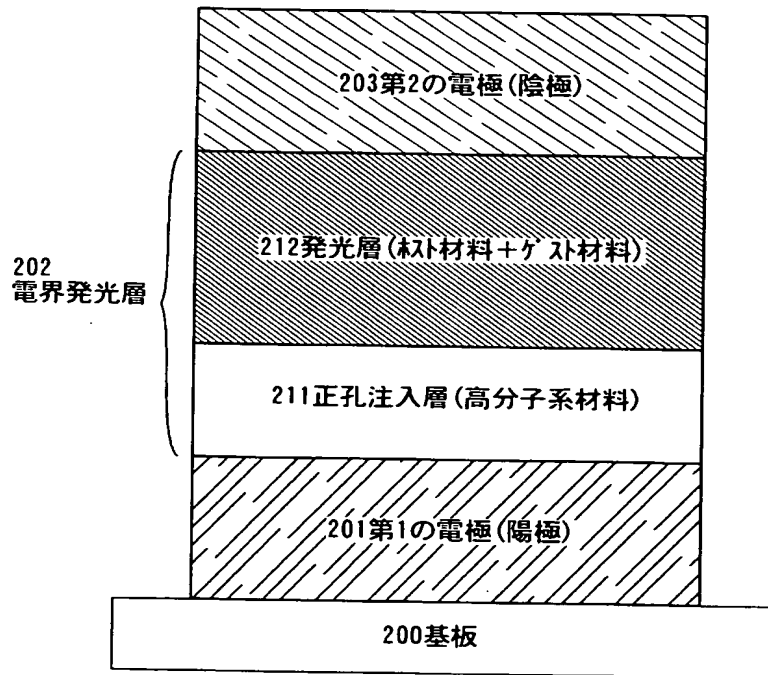
【書類名】

図面

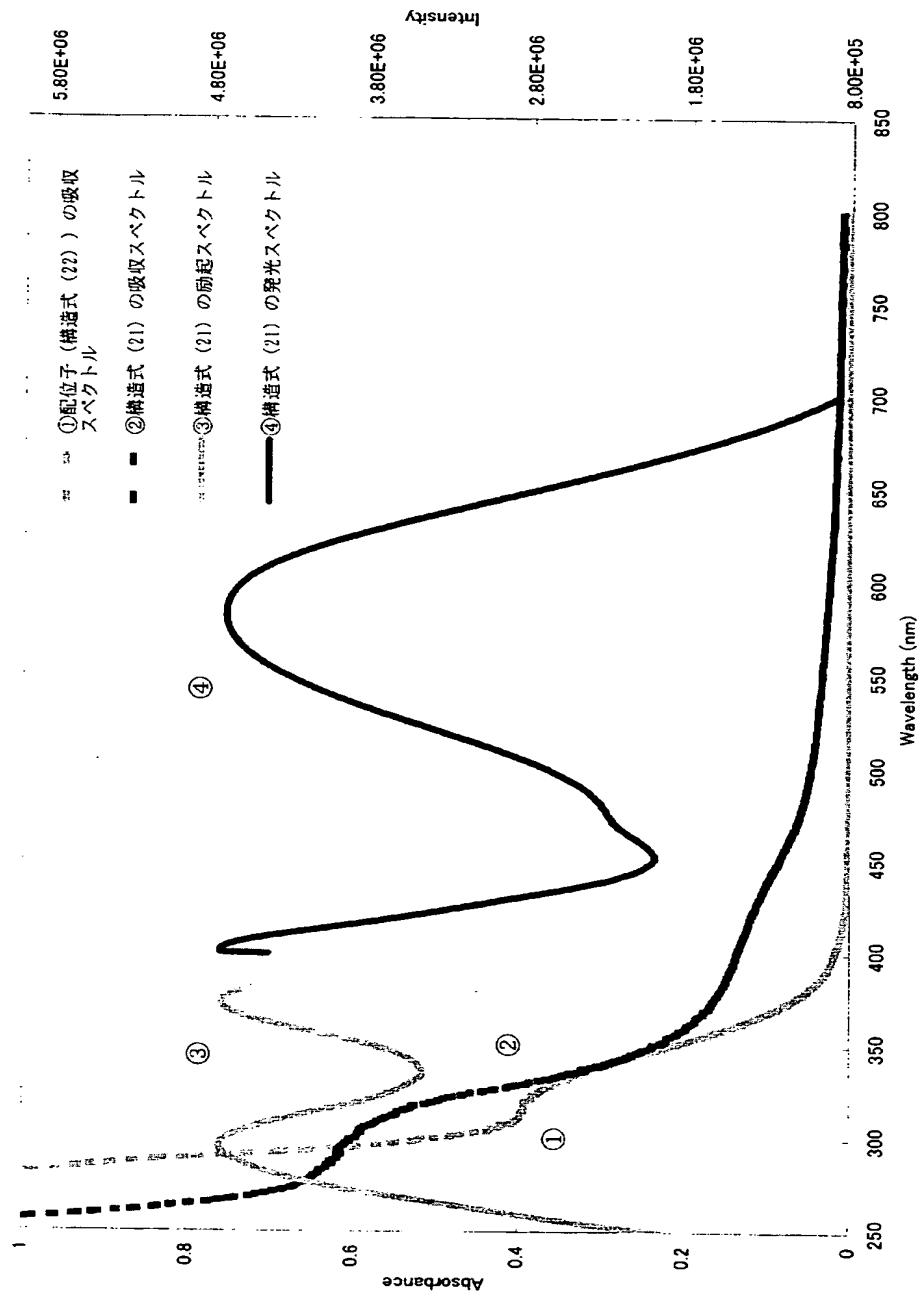
【図 1】



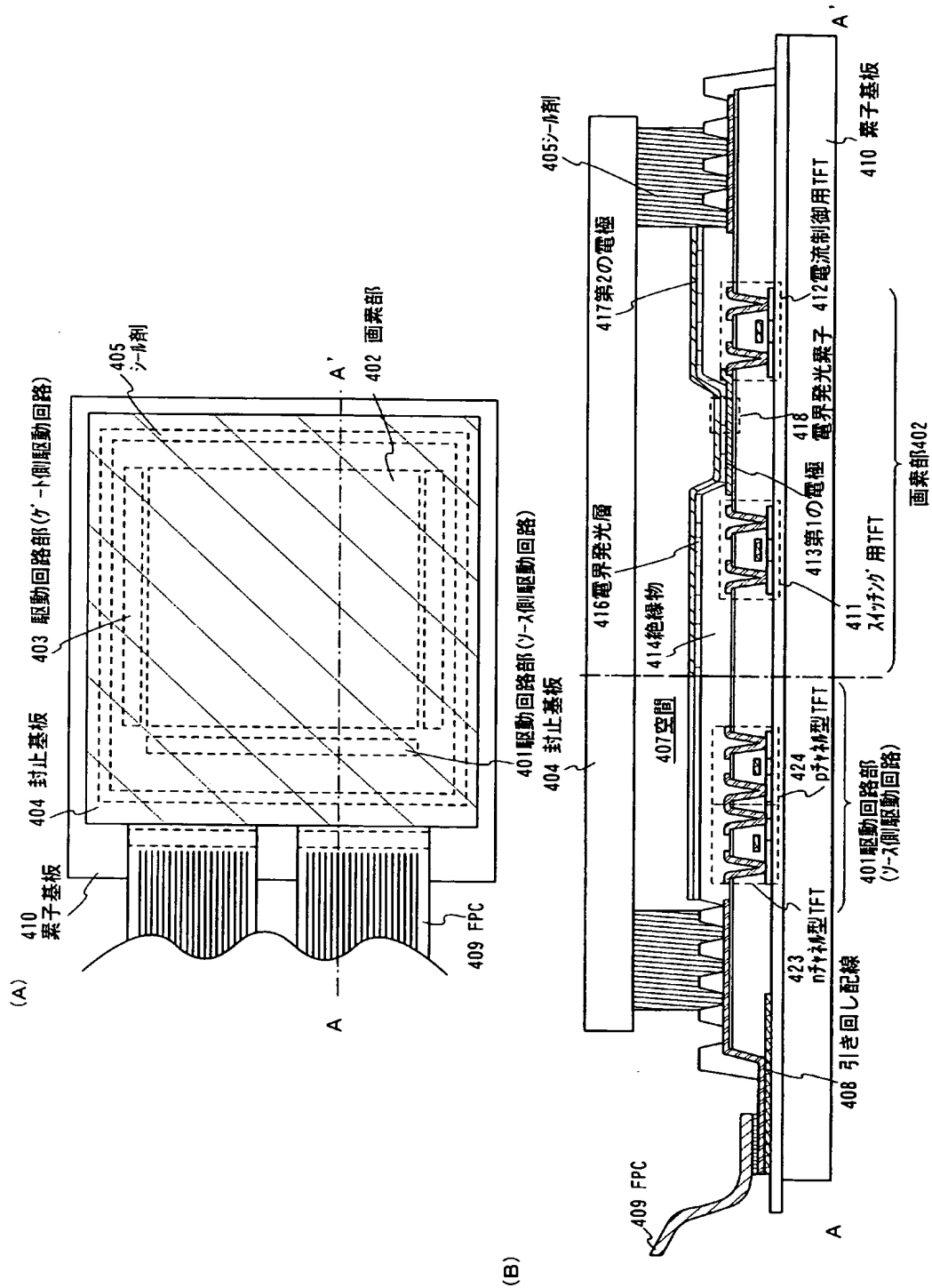
【図 2】



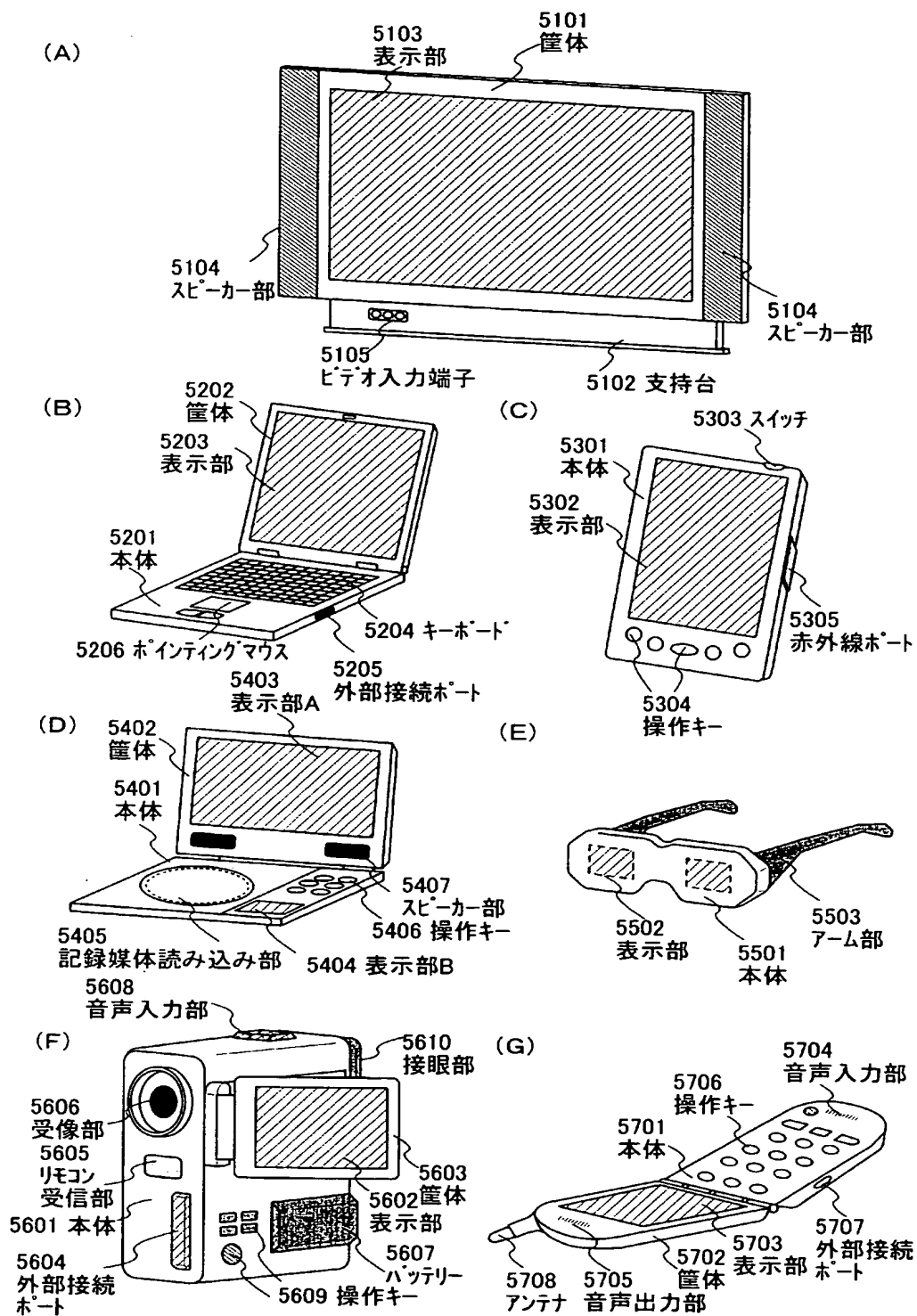
【図 3】



【図4】



【図 5】



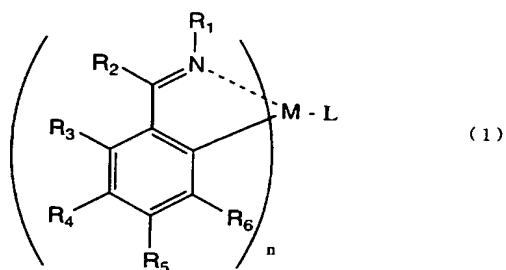
【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 本発明では、三重項励起状態を発光に変換できる有機金属錯体を合成することにより、燐光成分を有する白色系の発光材料を提供する。また特に、前記有機金属錯体を用いて白色系の電界発光素子を作製することにより、発光効率が高い上に容易に作製できる白色電界発光素子を提供する。さらには、前記電界発光素子を用いて消費電力の低い発光装置を提供する。

【解決手段】 一般式〔化1〕に代表される蛍光・燐光発光物質を合成する。この物質は可視光領域に蛍光・燐光発光の両成分を発光できるため、白色系の発光を達成できる。また、これを電界発光素子や発光装置に適用する。

【化1】



特願 2 0 0 2 - 3 6 8 9 9 0

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号

[0 0 0 1 5 3 8 7 8]

1. 変更年月日

1 9 9 0 年 8 月 1 7 日

[変更理由]

新規登録

住 所

神奈川県厚木市長谷 3 9 8 番地

氏 名

株式会社半導体エネルギー研究所